

## 明 細 書

### 皮膚外用貼付剤

### 技術分野

- [0001] 本発明は、粘着剤組成物及びそれを用いてなる皮膚外用貼付剤に関するものであり、詳しくは、経皮吸収製剤、救急絆創膏、サージカルドレッシング、サージカルドレープ、切開縫合部の補強用テープ、テーピングテープなどの皮膚外用貼付剤に関するものである。

### 背景技術

- [0002] ゴム系粘着剤は、一般に主成分となるゴム成分と粘着付与剤とからなり、その他に軟化剤や充填剤などを適宜配合してなるものである。ゴム成分や粘着付与剤は疎水性物質であり、水との相溶性や混和性が著しく低く、このような粘着剤を用いてなる皮膚外用貼付剤は入浴時や水仕事、発汗時に剥落してしまい易いので、予め高い粘着力を持たせておく必要がある。

接着力、粘着力を向上させるためには、粘着付与剤を増量すればよいが、前述したように疎水性が高くて水に馴染みにくく、また、系のガラス転移温度(Tg)が上昇して硬い粘着感となり、剥離時の痛みが強くなって、皮膚外用貼付剤として好ましくないものとなる。

そこで、特許文献1には、粘着付与剤を含有しない粘着剤が提案されている。液状ゴムを粘着付与剤の代わりに配合することにより、系全体が可塑化されてTgが低下し、被着体に対する接着性を向上させることができる。ところが、凝集力がやや不足する傾向にあり、流れて変形するなど長期安定性が不良であったり、凝集破壊や膏体残りが生じるなど、皮膚外用貼付剤としての使用感は満足できるものではない。

また、特許文献2では、常温で固形状のゴム成分と粘着付与剤及び液状ゴムの3つを組み合わせて特定の比率で含有させることを提案しているが、常温で固形状のゴムがA-B-A型ブロック共重合体であるときは、粘着性を確保するために粘着付与剤を多く必要とするので、硬い粘着感・剥離感となり、かぶれなどの皮膚刺激をもたらす易い。また、物理架橋点を有しない常温で固形状のゴムを用いると、凝集力が不十

分で膏体残りするなど、皮膚外用貼付剤としての使用感は満足できるものでない。

[0003] 特許文献1:特表平8-506127号公報

特許文献2:特開2002-69405号公報

## 発明の開示

### 発明が解決しようとする課題

[0004] したがって、本発明が解決しようとする課題は、皮膚外用貼付剤として気温の高低にかかわらず良好な粘着性を有し、長期保存性に優れ、必要な凝集力が保たれ、さらには無用な皮膚刺激をもたらさない粘着剤組成物を提供することにある。

### 課題を解決するための手段

[0005] 本発明者らは、上記課題を解決すべく鋭意研究を重ねる中で、ポリイソブレン、スチレン-イソブレン-スチレン共重合体、固形状のポリイソブチレン、非固形状のイソブチレンポリマーおよび粘着付与剤を必須成分として、特定の割合で配合すると、粘着力と凝集力のバランスに優れ、使用感が良く、水に対する剥離抵抗性、及び発汗時にも剥落しない皮膚外用貼付剤が得られることを見出し、さらに研究を進めた結果、本発明を完成するに至った。

[0006] すなわち、本発明は、ポリイソブレン、スチレン-イソブレン-スチレン共重合体および固形状のポリイソブチレンの3成分を10〜60:10〜50:20〜60の重量比率範囲で含有し、さらに、非固形状のイソブチレンポリマーおよび粘着付与剤を含有する粘着剤組成物であって、ポリイソブレン、スチレン-イソブレン-スチレン共重合体および固形状ポリイソブチレンの3成分の合計100重量部に対して(以下同じ)、非固形状イソブチレンポリマーが1重量部以上〜30重量部未満である前記粘着剤組成物に関する。

また、本発明は、固形状のポリイソブチレンの粘度平均分子量が900,000以上である、前記粘着剤組成物に関する。

さらに、本発明は、非固形状のイソブチレンポリマーの粘度平均分子量が70,000以下である、前記粘着剤組成物に関する。

また、本発明は、粘着付与剤の配合量が10〜80重量部の範囲である、前記粘着剤組成物に関する。

[0007] さらに、本発明は、粘着付与剤が、ロジン系樹脂、テルペン系樹脂、石油系樹脂、

フェノール系樹脂、キシレン系樹脂、アルキルフェノール系樹脂およびクマロンインデン系樹脂からなる群から選ばれる1種または2種以上である、前記粘着剤組成物に関する。

また、本発明は、薬物をさらに含有する前記粘着剤組成物に関する。

さらに、本発明は、前記粘着剤組成物を支持体に積層し、ライナーを被覆してなる皮膚外用貼付剤に関する。

本発明における固形状のポリイソブチレンとは、弾性固体状で、特に好ましくは、粘度平均分子量が900,000以上であり、非固形状のイソブチレンポリマーは、粘稠液体状であり、特に好ましくは、粘度平均分子量が70,000以下である。

- [0008] 本発明の粘着剤組成物において、ゴム成分としてポリイソプレン、固形状ポリイソブチレンを採用することにより、ソフトな粘着感と剥離感が得られ、不快なべたつき感がなく、皮膚に対する刺激も低減される。また、粘着力の加減は、分子量の低いイソブチレンポリマーと粘着付与剤とを適宜配合することにより、所望の特性を得ることができる。凝集力の加減は、主にスチレン-イソプレン-スチレン共重合体を増せば凝集力が高まり、ポリイソプレンと固形状ポリイソブチレンを増せば軟らかくなる。

### 発明の効果

- [0009] 本発明に係る粘着剤組成物は、使用感が良く、入浴時や水仕事、発汗時に容易に剥落しない等、粘着力と凝集力のバランスに優れ、従来品からは予測し得ない格別な効果を奏するものである。

### 発明を実施するための最良の形態

- [0010] 本発明に係る粘着剤組成物のポリイソプレン、スチレン-イソプレン-スチレン共重合体、固形状ポリイソブチレンの配合比率は、10-60:10-50:20-60が好ましく、15-50:25-45:30-50が更に好ましい。

これら3成分の好適な配合比率は、3成分以外の配合成分の量に依存して変化するが、傾向として、スチレン-イソプレン-スチレン共重合体の比率が多いと凝集力が増す。また、ポリイソプレンと固形状ポリイソブチレンは、比率が多いとソフトな粘着性と剥離感を付与する。

- [0011] 本発明に係る粘着剤組成物に含有されるポリイソプレンとしては、クレイトン社製のI

R-307、IR-310、クラレ社製のIR-10、JSR社製のIR2200、日本ゼオン社製のNi pol IR2200が挙げられる。

本発明に係る粘着剤組成物に含有されるスチレン-イソプレン-スチレン共重合体としては、クレイトン社製のD-1107、D-1111、JSR社製のSIS5000、SIS5002、SIS5405、SIS5500、SIS5505、日本ゼオン社製のクインタック3421、クインタック3422、クインタック3433、クインタック3435、クインタック3450、クインタック3530、クインタック3570Cが挙げられる。

本発明に係る粘着剤組成物に含有される固形状のポリイソブチレンとしては、エクソン社製のビスタネックスMML-80、ビスタネックスMML-100、ビスタネックスMML-120、ビスタネックスMML-140が挙げられる。

[0012] 本発明に係る粘着剤組成物に含有される非固形状のイソブチレンポリマーとしては、エクソンモービル社製のビスタネックスLM-MS、ビスタネックスLM-MH、BASF社製のオパノールB10SFN、オパノールB12SFN、オパノールB13SFN、新日本石油化学社製のテトラックス3T、テトラックス4T、テトラックス5T、テトラックス6T、ハイモール4H、ハイモール5H、ハイモール5.5H、ハイモール6H、日本油脂社製のニッサンポリブテン(ポリビス)015N、ニッサンポリブテン(ポリビス)5N、ニッサンポリブテン(ポリビス)10N、ニッサンポリブテン(ポリビス)200N、新日本石油化学社製の日石ポリブテンHV-50、日石ポリブテンHV-300、日石ポリブテンHV-1900が挙げられ、これらのうち1種もしくは2種以上を併用することができる。

[0013] 前記非固形状イソブチレンポリマーの配合量は、1重量部以上〜30重量部未満が好ましく、5〜25重量部が更に好ましい。配合量が多いとタック及び接着力が増すが、凝集力は低下する傾向にある。

[0014] 本発明に係る粘着剤組成物に含有される粘着付与剤としては、ロジン系樹脂〔エステルガム(荒川化学工業)、ハリエスター(播磨化成)、ハリタック(播磨化成)〕、テルペン系樹脂〔YSレジン(安原油脂)、ピコライト(理化ファインテック)〕、石油系樹脂〔アールコン(荒川化学工業)、リガレッツ(理化ファインテック)、エスコレッツ(エクソン)、ウィングタック(グッドイヤー)、クイントン(日本ゼオン)〕、フェノール系樹脂、キシレン系樹脂、アルキルフェノール系樹脂、キシレン系樹脂、クマロンインデン系樹脂を用いるこ

とができ、これらのうち一種もしくは二種以上を併用することができる。

前記粘着付与剤の配合量は、10〜80重量部が好ましく、30〜60重量部が更に好ましい。配合量を増すと、タック及び接着力が増すが、低温での粘着特性の面で不利となる。

[0015] 本発明に係る粘着剤組成物または皮膚外用貼付剤は、目的に応じ、薬物の他、必要なその他の成分を配合することができる。

本発明に係る粘着剤組成物に配合される薬物は、経皮吸収性薬物であれば特に限定はないが、例えば皮膚刺激剤、鎮痛消炎剤、抗真菌剤、中枢神経作用剤、利尿剤、血圧降下剤、冠血管拡張剤、鎮咳去痰剤、抗ヒスタミン剤、不整脈用剤、強心剤、避妊薬、副腎皮質ホルモン剤または局所麻酔剤が挙げられる。

[0016] 前記皮膚刺激剤及び鎮痛消炎剤は、例えばサリチル酸、サリチル酸メチル、サリチル酸グリコール、アセチルサリチル酸、l-メントール、カンフル(d体、l体、dl体)、ハッカ油、チモール、ニコチン酸ベンジルエステル、トウガラシエキス、カプサイシン、ノニル酸ワニルアミド、フェルビナク、フルフェナム酸ブチル、ピロキシカム、インドメタシン、ケトプロフェン、プラノプロフェン、フェブラゾン、フルルビプロフェン、ロキソプロフェン、アンフェナクナトリウム、オキサプロジン、エモルファゾン、チアプロフェン、フェンブフェン、プラノプロフェン、フェンチアザック、ジクロフェナクナトリウム、ジフルニサル、イブプロフェンピコノール、ベンダザック、スプロフェン、塩酸ブプレノルフィン、ペンタゾシンまたは酒石酸ブトルファノールが挙げられる。

[0017] 前記抗真菌剤は、例えばビホナゾール、クロトリマゾール、チオコナゾール、ミコナール、エコナゾール、イソコナゾール、スルコナゾール、オキシコナゾール、クロコナゾール、ケトコナゾール、ネチコナゾール、ライコナゾール、オモコナゾール、イトラコナゾール、フルコナゾール、テルビナフィン、ナフチフィン、ブテナフィン、アモロルフィン、リラナフタート、ナフチオメートN、トルナフタート(ナフチオメートT)、トルシクラート、ウンデシレン酸、フェニル-11-ヨード-10-ウンデシノエート、サリチル酸、シッカニン、トリコマイシン、ピロールニトリン、ナイスタチン、ピマリシン、グリセオフルビン、バリオチン、アンフォテリシンB、エキサラミド、シクロピロクスオラミン、ハロプロジン、ジエチルジチオカルバミン酸亜鉛、チアントール、フルシトシン、2,4,6-トリブロムフェニルカ

プロン酸エステル、トリメチルセチルアンモニウムペンタクロロフェネート、イオウまたは木槿皮(モッキンピ)が挙げられる。

- [0018] 前記中枢神経作用剤(催眠鎮静剤、抗てんかん剤、精神神経用剤)は、例えばフルフェナジン、チオリダジン、ジアゼパム、クロルプロマジン、ニトラゼパム、エスタゾラム、トリアゾラム、ニメタゼパム、フルニトラゼパム、ハロキサゾラム、フルラゼパム、クロナゼパム、プロペリシアジン、プロクロルペラジン、アルプラゾラム、オキサゼパム、オキサゾラム、クロキサゾラム、プラゼパム、フルタゾラム、メキサゾラム、ロラゼパム、フルジアゼパム、プロマゼパムまたはメタゼパムが挙げられる。
- [0019] 前記利尿剤は、例えばハイドロサイアザイド、ペンドロフルナサイアザイド、エチアジド、シクロペンチアジド、ヒドロクロロチアジド、ペンフルチド、メチクロチアジド、フロセミド、メトラゾン、ポリチアジドまたはベンドロフルメチアジドが挙げられる。
- [0020] 前記血圧降下剤は、例えばクロニジン、アルサーオキシロン、レシナミン、メシル酸ジヒドロエルゴトキシン、レセルピン、プラゾシン、カプトプリル、ピンドロールまたはマレイン酸エナラプリルが挙げられる。
- [0021] 前記冠血管拡張剤は、例えばニログリセリン、ニログリコール、イソソルバイドナイトレート、塩酸パパベリン、ジピリダモール、エフロキサート、トリメタジン、ニコランジル、シンナリジン、ナイリドン、モルシドミンまたはニフェジピンが挙げられる。
- [0022] 前記鎮咳去痰剤は、例えばリン酸コデイン、リン酸ジヒドロコデイン、塩酸エフェドリン、塩酸クロルプレナリン、臭化水素酸フェノテロール、硫酸サルブタモール、リン酸ジメモルファン、塩酸アゼラスチン、塩酸クレンプテロール、塩酸ツロブテロール、塩酸トリメトキシノール、塩酸プロカテロール、塩酸ブロムヘキシン、トラニラスト、ヒベンズ酸チペピジン、フマル酸ケトチフェン、フマル酸フォルモテロール、リン酸ベンプロペリンまたはグリチルレチン酸が挙げられる。
- [0023] 前記抗ヒスタミン剤は、例えば塩酸ジフェンヒドラミン、塩酸トリプロリジン、塩酸イソチペンジル、塩酸プロメタジン、マレイン酸クロルフェニラミン、塩酸シプロヘプタジン、フマル酸クレマスチン、マレイン酸クロルフェニラミン、マレイン酸カルビノキサミンまたはマレイン酸ジメチンデンが挙げられる。
- [0024] 前記不整脈用剤は、例えばアルプレノロール、オクスプレノロール、ブクモロール、

ブプラノロール、ピンドロール、インデノロール、カルテオロール、ブフェトロール、プロプラノロールまたはチモロールが挙げられる。

前記強心剤は、例えばジギタリス、ユピデカレノン、ジゴキシン、メチルジゴキシンまたはデスラノシドが挙げられる。

- [0025] 前記避妊薬は、例えばエストラジオールエナンテート、エストラジオールシピネート、レボノルゲストレルまたはエストラジオールが挙げられる。

前記副腎皮質ホルモン剤は、例えば酢酸ヒドロコルチゾン、ヒドロコルチゾン、プレドニゾロン、トリアムシノロンアセトニド、デキサメタゾンリン酸エステル、メチルプレドニゾロン、酢酸ダイクロリゾン、酢酸メチルプレドニゾロン、フルオシノロンアセトニド、酢酸デキサメタゾン、デキサメタゾン、フルオロメトロン、リン酸ベタメタゾンナトリウム、ベタメタゾン、吉草酸ベタメタゾン、プロピオン酸ベクロメタゾン、フルドロキシコルチド、酪酸ヒドロコルチゾン、ジプロピオン酸ベタメタゾン、フルオシノニド、プロピロン酸クロベタゾール、吉草酸ジフルコルトロン、ハルシノニド、アムシノニド、吉草酸プレドニゾロン等。

- [0026] 前記局所麻酔剤は、例えばリドカイン、アミノ安息香酸エチル、塩酸プロカイン、ジブカインまたはプロカインが挙げられる。

前記薬物は、一種または二種以上を適宜配合されて用いられる。

- [0027] また、本発明の粘着剤組成物または皮膚外用貼付剤は、救急絆創膏、手術後の傷口保護を目的としたサージカルドレッシング、切開部の細菌汚染防止を目的としたサージカルドレープ、切開縫合部の補強固定用テープ、更にはスポーツ時に用いるテーピング等にも利用可能である。

本発明に係る粘着剤組成物に配合されるその他の成分は、軟化剤、吸収促進剤、溶解剤、可溶化剤、充填剤、老化防止剤、酸化防止剤、防腐剤、紫外線吸収剤、着色剤、着香剤、界面活性剤、pH調整剤、など粘着剤組成物の目的に応じた成分を配合することができる。

- [0028] 本発明に係る皮膚外用貼付剤の支持体は、例えばポリエチレン、ポリプロピレン、ポリブタジエン、エチレン・酢酸ビニル共重合体、ポリ塩化ビニル、ポリエチレンテレフタレート(PET)やポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレートなどのポリエス

テル、ナイロン、ポリウレタン、綿、レイヨン(セルロース誘導体)、アルミニウム等のフィルム、シートまたは箔、あるいはこれらの多孔体、発泡体そして紙、織布、編布、不織布等の伸縮性または非伸縮性のものが選ばれ、これらの積層体を用いることもできる。

[0029] 本発明に係る皮膚外用貼付剤のライナーは、例えばポリエチレン、ポリプロピレン、ポリエチレンテレフタレート(PET)やポリエチレンナフタレートなどのポリエステル、ナイロン、アルミニウム等のフィルム、シート、箔、または紙等が選ばれ、これらの積層体を用いることもできる。また、粘着剤の剥離を容易にするために、前記ライナーの表面をシリコン、テフロン(登録商標)、界面活性剤等で表面処理することができる。

[0030] 本発明に係る粘着剤組成物及び皮膚外用貼付剤の製造法は、従来実施されている方法でも良いが、一例として溶解あるいは混練された粘着剤組成物に目的に応じた薬物等を混合し、支持体に直接展延するか、もしくは一旦剥離処理の施された紙、フィルム等のライナーに展延し、その後支持体に圧着転写して製造することもできる。

[0031] 本発明に係る皮膚外用貼付剤の粘着剤層の展延の厚みは、 $30\mu\text{m}$ 〜 $400\mu\text{m}$ が好ましく、 $50\mu\text{m}$ 〜 $200\mu\text{m}$ が更に好ましい。粘着層の厚みが厚いと粘着剤に含まれる薬剤の放出率が悪くなる傾向にあり、他方、 $30\mu\text{m}$ 未満では皮膚への接着性が劣り、剥がれの原因となる傾向にあるからである。

## 実施例

[0032] 以下、本発明の粘着剤組成物および皮膚外用貼付剤について、実施例および試験例により更に詳しく説明するが、これは本発明を何ら限定するものではない。

### 〔実施例1〕

ポリイソブレン Nipol IR2200(日本ゼオン製)20部、固形状ポリイソブチレン ビスタネックス MML-100(エクソンモービル製)40部、スチレン-イソブレン-スチレンブロック共重合体 クインタック 3570C(日本ゼオン製)40部、非固形状イソブチレンポリマー ビスタネックス LM-MH(エクソンモービル製)10部、アルコン P-100(荒川化学工業製)40部よりなる粘着剤組成物に、流動パラフィン 40部、酸化亜鉛 14部、含水シリカ 10部を添加混合し、次いでサリチル酸メチル 6重量%、l-メントール 6重量%、dl-カンフル 1重量%、酢酸トコフェロール 2.0重量%を配合し、PETフィルムに厚さ $200\mu\text{m}$ に



なるように展延し、シリコン処理の施されたPETライナーを被覆し、所望の形状に裁断し、本発明の皮膚外用貼付剤とした。

[0033] 〔実施例2〕

ポリイソブレン Nipol IR2200 (日本ゼオン製) 40部、固形状ポリイソブチレン ビスタネックス MML-100 (エクソンモービル製) 30部、スチレン-イソブレン-スチレンブロック共重合体 クインタック 3570C (日本ゼオン製) 30部、非固形状イソブチレンポリマー ビスタネックス LM-MH (エクソンモービル製) 10部、アルコン P-100 (荒川化学工業製) 40部よりなる粘着剤組成物に流動パラフィン 40部、酸化亜鉛 14部、含水シリカ 10部を添加混合し、次いでサリチル酸メチル 6重量%、l-メントール 6重量%、dl-カンフル 1重量%、酢酸トコフェロール 2.0重量%を配合し、PETフィルムに厚さ200  $\mu$ mになるように展延し、シリコン処理の施されたPETライナーを被覆し、所望の形状に裁断し、本発明の皮膚外用貼付剤とした。

[0034] 〔実施例3〕

ポリイソブレン Nipol IR2200 (日本ゼオン製) 27部、固形状ポリイソブチレン ビスタネックス MML-100 (エクソンモービル製) 55部、スチレン-イソブレン-スチレンブロック共重合体 クインタック 3570C (日本ゼオン製) 18部、非固形状イソブチレンポリマー ビスタネックス LM-MH (エクソンモービル製) 5部、アルコン P-100 (荒川化学工業製) 60部よりなる粘着剤組成物に流動パラフィン 60部、酸化亜鉛 14部、含水シリカ 10部を添加混合し、次いでサリチル酸メチル 6重量%、l-メントール 6重量%、dl-カンフル 1重量%、酢酸トコフェロール 2.0重量%を配合し、PETフィルムに厚さ200  $\mu$ mになるように展延し、シリコン処理の施されたPETライナーを被覆し、所望の形状に裁断し、本発明の皮膚外用貼付剤とした。

[0035] 〔実施例4〕

ポリイソブレン Nipol IR2200 (日本ゼオン製) 27部、固形状ポリイソブチレン ビスタネックス MML-100 (エクソンモービル製) 55部、スチレン-イソブレン-スチレンブロック共重合体 クインタック 3570C (日本ゼオン製) 18部、非固形状イソブチレンポリマー ビスタネックス LM-MH (エクソンモービル製) 15部、アルコン P-100 (荒川化学工業製) 60部よりなる粘着剤組成物に流動パラフィン 60部、酸化亜鉛 14部、含水シリカ 10部を

添加混合し、次いでサリチル酸メチル 6重量%、l-メントール 6重量%、dl-カンフル 1重量%、酢酸トコフェロール 2.0重量%を配合し、PETフィルムに厚さ200  $\mu$ mになるように展延し、シリコン処理の施されたPETライナーを被覆し、所望の形状に裁断し、本発明の皮膚外用貼付剤とした。

[0036] [実施例5]

ポリイソブレン Nipol IR2200(日本ゼオン製)27部、固形状ポリイソブチレン ビスタネックス MML-100(エクソンモービル製)55部、スチレン-イソブレン-スチレンブロック共重合体 クインタック 3570C(日本ゼオン製)18部、非固形状イソブチレンポリマー ビスタネックス LM-MH(エクソンモービル製)25部、アルコン P-100(荒川化学工業製)60部よりなる粘着剤組成物に流動パラフィン 60部、酸化亜鉛 14部、含水シリカ 10部を添加混合し、次いでサリチル酸メチル 6重量%、l-メントール 6重量%、dl-カンフル 1重量%、酢酸トコフェロール 2.0重量%を配合し、PETフィルムに厚さ200  $\mu$ mになるように展延し、シリコン処理の施されたPETライナーを被覆し、所望の形状に裁断し、本発明の皮膚外用貼付剤とした。

[0037] [実施例6]

ポリイソブレン Nipol IR2200(日本ゼオン製)50部、固形状ポリイソブチレン ビスタネックス MML-100(エクソンモービル製)30部、スチレン-イソブレン-スチレンブロック共重合体 クインタック 3570C(日本ゼオン製)20部、非固形状イソブチレンポリマー 日石ポリブテン HV-300(新日本石油化学製)10部、アルコン P-100(荒川化学工業製)40部よりなる粘着剤組成物に流動パラフィン 40部、酸化亜鉛 14部、含水シリカ 10部を添加混合し、次いでサリチル酸メチル 6重量%、l-メントール 6重量%、dl-カンフル 1重量%、酢酸トコフェロール 2.0重量%を配合し、PETフィルムに厚さ200  $\mu$ mになるように展延し、シリコン処理の施されたPETライナーを被覆し、所望の形状に裁断し、本発明の皮膚外用貼付剤とした。

[0038] [実施例7]

ポリイソブレン Nipol IR2200(日本ゼオン製)50部、固形状ポリイソブチレン ビスタネックス MML-100(エクソンモービル製)30部、スチレン-イソブレン-スチレンブロック共重合体 クインタック 3570C(日本ゼオン製)20部、非固形状イソブチレンポリマー 日

石ポリブテン HV-300(新日本石油化学製)20部、アルコン P-100(荒川化学工業製)40部よりなる粘着剤組成物に流動パラフィン 40部、酸化亜鉛 14部、含水シリカ 10部を添加混合し、次いでサリチル酸メチル 6重量%、l-メントール 6重量%、dl-カンフル 1重量%、酢酸トコフェロール 2.0重量%を配合し、PETフィルムに厚さ200  $\mu$ mになるように展延し、シリコン処理の施されたPETライナーを被覆し、所望の形状に裁断し、本発明の皮膚外用貼付剤とした。

[0039] [実施例8]

ポリイソブレン Nipol IR2200(日本ゼオン製)50部、固形状ポリイソブチレン ビスタネックス MML-100(エクソンモービル製)30部、スチレン-イソブレン-スチレンブロック共重合体 クインタック 3570C(日本ゼオン製)20部、非固形状イソブチレンポリマー ビスタネックス LM-MH(エクソンモービル製)10部、アルコン P-100(荒川化学工業製)40部よりなる粘着剤組成物に流動パラフィン 40部、酸化亜鉛 14部、含水シリカ 10部を添加混合し、次いでサリチル酸メチル 6重量%、l-メントール 6重量%、dl-カンフル 1重量%、酢酸トコフェロール 2.0重量%を配合し、PETフィルムに厚さ200  $\mu$ mになるように展延し、シリコン処理の施されたPETライナーを被覆し、所望の形状に裁断し、本発明の皮膚外用貼付剤とした。

[0040] [実施例9]

ポリイソブレン Nipol IR2200(日本ゼオン製)50部、固形状ポリイソブチレン ビスタネックス MML-100(エクソンモービル製)30部、スチレン-イソブレン-スチレンブロック共重合体 クインタック 3570C(日本ゼオン製)20部、非固形状イソブチレンポリマー ビスタネックス LM-MH(エクソンモービル製)20部、アルコン P-100(荒川化学工業製)40部よりなる粘着剤組成物に流動パラフィン 40部、酸化亜鉛 14部、含水シリカ 10部を添加混合し、次いでサリチル酸メチル 6重量%、l-メントール 6重量%、dl-カンフル 1重量%、酢酸トコフェロール 2.0重量%を配合し、PETフィルムに厚さ200  $\mu$ mになるように展延し、シリコン処理の施されたPETライナーを被覆し、所望の形状に裁断し、本発明の皮膚外用貼付剤とした。

[0041] [実施例10]

ポリイソブレン Nipol IR2200(日本ゼオン製)21部、固形状ポリイソブチレン ビスタネ

ックス MML-100(エクソンモービル製)43部、スチレン-イソプレン-スチレンブロック共重合体 クインタック 3570C(日本ゼオン製)36部、非固形状イソブチレンポリマー ビスタネックス LM-MH(エクソンモービル製)15部、アルコン P-100(荒川化学工業製)60部よりなる粘着剤組成物に流動パラフィン 70部、酸化亜鉛 14部、含水シリカ 10部を添加混合し、次いでサリチル酸メチル 6重量%、1-メントール 6重量%、dl-カンフル 1重量%、酢酸トコフェロール 2.0重量%を配合し、PETフィルムに厚さ200  $\mu$ mになるように展延し、シリコン処理の施されたPETライナーを被覆し、所望の形状に裁断し、本発明の皮膚外用貼付剤とした。

[0042] [実施例11]

ポリイソブレン Nipol IR2200(日本ゼオン製)21部、固形状ポリイソブチレン ビスタネックス MML-100(エクソンモービル製)43部、スチレン-イソプレン-スチレンブロック共重合体 クインタック 3570C(日本ゼオン製)36部、非固形状イソブチレンポリマー 日石ポリブテン HV-300(新日本石油化学製)7.5部、アルコン P-100(荒川化学工業製)60部よりなる粘着剤組成物に流動パラフィン 70部、酸化亜鉛 14部、含水シリカ 10部を添加混合し、次いでサリチル酸メチル 6重量%、1-メントール 6重量%、dl-カンフル 1重量%、酢酸トコフェロール 2.0重量%を配合し、PETフィルムに厚さ200  $\mu$ mになるように展延し、シリコン処理の施されたPETライナーを被覆し、所望の形状に裁断し、本発明の皮膚外用貼付剤とした。

[0043] [実施例12]

ポリイソブレン Nipol IR2200(日本ゼオン製)21部、固形状ポリイソブチレン ビスタネックス MML-100(エクソンモービル製)43部、スチレン-イソプレン-スチレンブロック共重合体 クインタック 3570C(日本ゼオン製)36部、非固形状イソブチレンポリマー 日石ポリブテン HV-300(新日本石油化学製)15部、アルコン P-100(荒川化学工業製)60部よりなる粘着剤組成物に流動パラフィン 70部、酸化亜鉛 14部、含水シリカ 10部を添加混合し、次いでサリチル酸メチル 6重量%、1-メントール 6重量%、dl-カンフル 1重量%、酢酸トコフェロール 2.0重量%を配合し、PETフィルムに厚さ200  $\mu$ mになるように展延し、シリコン処理の施されたPETライナーを被覆し、所望の形状に裁断し、本発明の皮膚外用貼付剤とした。

## [0044] [比較例1]

固形状ポリイソブチレン ビスタネックス MML-100(エクソンモービル製)30部、スチレン-イソプレン-スチレンブロック共重合体 クインタック 3570C(日本ゼオン製)30部、非固形状イソブチレンポリマー ビスタネックス LM-MH(エクソンモービル製)10部、アルコン P-100(荒川化学工業製)40部よりなる粘着剤組成物に流動パラフィン 40部、酸化亜鉛 14部、含水シリカ 10部を添加混合し、次いでサリチル酸メチル 6重量%、1-メントール 6重量%、dl-カンフル 1重量%、酢酸トコフェロール 2.0重量%を配合し、PETフィルムに厚さ200  $\mu$ mになるように展延し、シリコン処理の施されたPETライナーを被覆し、所望の形状に裁断し、比較例1の皮膚外用貼付剤とした。

## [0045] [比較例2]

ポリイソプレン Nipol IR2200(日本ゼオン製)27部、固形状ポリイソブチレン ビスタネックス MML-100(エクソンモービル製)55部、スチレン-イソプレン-スチレンブロック共重合体 クインタック 3570C(日本ゼオン製)18部、アルコン P-100(荒川化学工業製)60部よりなる粘着剤組成物に流動パラフィン 60部、酸化亜鉛 14部、含水シリカ 10部を添加混合し、次いでサリチル酸メチル 6重量%、1-メントール 6重量%、dl-カンフル 1重量%、酢酸トコフェロール 2.0重量%を配合し、PETフィルムに厚さ200  $\mu$ mになるように展延し、シリコン処理の施されたPETライナーを被覆し、所望の形状に裁断し、比較例2の皮膚外用貼付剤とした。

## [0046] [比較例3]

ポリイソプレン Nipol IR2200(日本ゼオン製)50部、固形状ポリイソブチレン ビスタネックス MML-100(エクソンモービル製)30部、スチレン-イソプレン-スチレンブロック共重合体 クインタック 3570C(日本ゼオン製)20部、アルコン P-100(荒川化学工業製)40部よりなる粘着剤組成物に流動パラフィン 40部、酸化亜鉛 14部、含水シリカ 10部を添加混合し、次いでサリチル酸メチル 6重量%、1-メントール 6重量%、dl-カンフル 1重量%、酢酸トコフェロール 2.0重量%を配合し、PETフィルムに厚さ200  $\mu$ mになるように展延し、シリコン処理の施されたPETライナーを被覆し、所望の形状に裁断し、比較例3の皮膚外用貼付剤とした。

## [0047] [比較例4]

ポリイソブレン Nipol IR2200(日本ゼオン製)21部、固形状ポリイソブチレン ビスタネックス MML-100(エクソンモービル製)43部、スチレン-イソブレン-スチレンブロック共重合体 クインタック 3570C(日本ゼオン製)36部、アルコン P-100(荒川化学工業製)60部よりなる粘着剤組成物に流動パラフィン 70部、酸化亜鉛 14部、含水シリカ 10部を添加混合し、次いでサリチル酸メチル 6重量%、l-メントール 6重量%、dl-カンフル 1重量%、酢酸トコフェロール 2.0重量%を配合し、PETフィルムに厚さ200 $\mu$ mになるように展延し、シリコン処理の施されたPETライナーを被覆し、所望の形状に裁断し、比較例4の皮膚外用貼付剤とした。

[0048] 上記各実施例および各比較例にてえられた皮膚外用剤について、フィンガータック、180° 剥離およびプローブタック値を以下の方法によって評価し、その結果を表に示した。

[0049] [フィンガータック]

粘着剤を指で触れたときの触覚、剥離時の感触およびその後の皮膚感触等から、粘着剤のタックの強さの他、接着の強さ、残留する皮膚のべたつきなどを評価した(◎=良好、○=可、△=可不可なし、×=不可)。なお、特記すべき粘着感があったものはその特徴を記載した(表1)。

[プローブタック]

ASTMD2979に記載の試験法に準じて測定した(引き剥がし速度10mm/sec、接着時間2sec)。

[180° 剥離]

JIS Z0237に記載の試験法に準じて測定した(検体幅20mm、剥離速度300mm/min、ただし被着体はベークライト)

[0050] [表1]

表 1

	プローブタック (g f)	180° 剥離 (g f)	フィンガータック	
実施例 1	32.6	29.3	○	良好
実施例 2	23.3	25.2	○	良好
実施例 3	38.5	73.8	○	少し食いつきが悪い
実施例 4	46.4	70.9	◎	極めて良好
実施例 5	69.6	85.5	○	良好
実施例 6	43.2	28.1	◎	極めて良好
実施例 7	57.7	37.4	◎	極めて良好
実施例 8	53.3	37.9	○	良好
実施例 9	77.2	50.3	○	良好
比較例 1	40.1	55.4	△	膏体が硬く、剥離時に痛みを伴う
比較例 2	35.7	39.0	△	粘着性が弱い
比較例 3	36.2	29.3	△	粘着性が弱い

[0051] 一般的に、使用に耐える皮膚外用剤のプローブタック値は、20～150gfの範囲、180° 剥離については、20～2000の範囲と考えられるが、本発明の皮膚外用剤については、プローブタック値および180° 剥離の双方が、この許容範囲内であり、十分な粘着性を有していることが分かる。さらに、フィンガータック試験においても、皮膚粘着性および使用感が共に優れていた。

一方、比較例1、2および3の皮膚外用剤については、プローブタックおよび180° 剥離試験において、十分な粘着性を有しているように見えるが、実際に皮膚へ適用したときの粘着性および使用感が、本発明の皮膚外用剤に比べ劣っていた。

[0052] [試験例2]

発汗時の付着性試験

本発明に係る実施例10、11、12、及び比較例4の各貼付剤を被験者6名に貼付し、被験者が発汗したときの付着性を評価した。

本被験者らは、各貼付剤を前腕内側に貼付し、摂食し、階段の昇降を5分間継続し、30℃に維持した室内で15分間歩行した後、アンケートに結果を記入した。

[0053] [表2]

表 2

	結果（付着性）
実施例 1 0	○
実施例 1 1	◎
実施例 1 2	○
比較例 4	×

◎：良好、 ○：可     ×：不可

[0054] [試験例3] 入浴時の付着性試験

本発明に係る実施例10、11、12、及び比較例4の各貼付剤を被験者6名に貼付し、被験者が入浴したときの付着性を評価した。

本被験者らは、各貼付剤を前腕内側に貼付し、その1時間後に入浴し、湯船に5分間つかった後、アンケートに結果を記入した。

[0055] [表3]

表 3

	結果（付着性）
実施例 1 0	○
実施例 1 1	◎
実施例 1 2	◎
比較例 4	×

◎：良好、 ○：可     ×：不可

[0056] 上記試験の結果から明らかなように、本発明の粘着剤組成物及び皮膚外用貼付剤は、粘着力と凝集力のバランスに優れ、使用感が良く、水に対する剥離抵抗性、及び発汗時の耐汗性を有しており、利用範囲が極めて広い。

産業上の利用可能性

[0057] 本発明の皮膚外用貼付剤は、粘着力と凝集力のバランスに優れることから、薬物な



どの成分を含有させて、経皮吸収製剤などの皮膚外用貼付剤に利用され、関連産業の発達に貢献するところ大である。

## 請求の範囲

- [1] ポリイソプレン、スチレン-イソプレン-スチレン共重合体および固形状のポリイソブチレンの3成分を10-60:10-50:20-60の重量比率範囲で含有し、さらに、非固形状のイソブチレンポリマーおよび粘着付与剤を含有する粘着剤組成物であって、  
ポリイソプレン、スチレン-イソプレン-スチレン共重合体および固形状ポリイソブチレンの3成分の合計100重量部に対して(以下同じ)、非固形状イソブチレンポリマーが1重量部以上-30重量部未満である前記粘着剤組成物。
- [2] 固形状のポリイソブチレンの粘度平均分子量が900,000以上である、請求項1に記載の粘着剤組成物。
- [3] 非固形状のイソブチレンポリマーの粘度平均分子量が70,000以下である、請求項1または2に記載の粘着剤組成物。
- [4] 粘着付与剤の配合量が10-80重量部の範囲である、請求項1-3のいずれかに記載の粘着剤組成物。
- [5] 粘着付与剤が、ロジン系樹脂、テルペン系樹脂、石油系樹脂、フェノール系樹脂、キシレン系樹脂、アルキルフェノール系樹脂およびクマロンインデン系樹脂からなる群から選ばれる1種または2種以上である、請求項1-4のいずれかに記載の粘着剤組成物。
- [6] 薬物をさらに含有する、請求項1-5のいずれかに記載の粘着剤組成物。
- [7] 請求項1-6のいずれかに記載の粘着剤組成物を支持体に積層し、ライナーを被覆してなる皮膚外用貼付剤。